

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
5. April 2001 (05.04.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/23474 A2

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C08L 63/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/09015

(22) Internationales Anmeldedatum:
15. September 2000 (15.09.2000)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
199 46 323.9 28. September 1999 (28.09.1999) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WARTH, Holger
[DE/DE]; Pommernallee 18, 41539 Dormagen (DE).
WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirch-
ner-Str. 41, 51375 Leverkusen (DE). ALBERTS,
Heinrich [DE/DE]; Schulstr. 1 a, 51519 Odenthal (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-
SELLSCHAFT; 51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU,
CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM,
HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK,
LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX,
MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL,
TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eura-
sisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI,
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu
veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: POLYMER BLENDS CONTAINING MODIFIED POLYESTERS

(54) Bezeichnung: POLYMERBLENDS ENTHALTEND MODIFIZIERTE POLYESTER

(57) Abstract: The present invention relates to polymer blends containing a component selected from the group poly(ester)carbonate, graft polymers or mixtures thereof. Said blends also contain polyalkylene naphthalate as the second component and optionally an additional component selected from the group of vinyl (co)polymers, polyalkylene terephthalate or mixtures thereof, whereby mixtures of polycarbonate, polyalkylene naphthalate and optionally polyalkylene terephthalate do not contain a tetra fluor ethylene polymer.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft Polymerblends, enthaltend eine Komponente ausgewählt aus der Gruppe Poly(ester)carbonate, Pfropfpolymerisate oder Mischungen hiervon, als zweite Komponente Polyalkylenaphthalat sowie gegebenenfalls eine weitere Komponente ausgewählt aus der Gruppe aus Vinyl(co)polymerisate, Polyalkylenterephthalate oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus Polycarbonat, Polyalkylenaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylenterephthalat kein Tetrafluorethylenpolymerisat enthalten.

WO 01/23474 A2

Polymerblends enthaltend modifizierte Polyester

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Polymerblends, enthaltend modifizierte Polyester insbesondere mit verbesserten optischen Eigenschaften sowie deren
5 Verwendung.

In der EP-A 0603664 werden z.B. Polymerblends beschrieben, die aus Polycarbonaten und ABS-Polymerisaten bestehen. Weitere Beispiele für Polymerblends enthaltend Polycarbonate sind in der JP-A10245481 und der EP-A 846729 zu finden.

10

Darüber hinaus werden Polycarbonate in Verbindung mit Pfropfpolymerisaten in der EP-A 0785234 beschrieben.

15

Daneben ist auch der Einsatz von Polymerblends bekannt, die Polyethylenterephthalate und Polyethylennaphthalate enthalten. Hauptanwendungsgebiete sind hierbei die Herstellung von Kunststoff-Flaschen mit verbesserten Eigenschaften. Dieses Thema wird zum Beispiel in den folgenden Übersichtsartikeln behandelt:

20

- E. Nunes, J. Agnelli, R. Rossi: Brazil. Polim. Tecnol. 8 (1998) 55-67
- M. Xanthos, H. Warth, S. Fakirov Ed., Transreactions in Condensation Polymers, Kap. 10, Wiley, 1999.

25

In der WO 9824844 ist ferner die Umesterungskontrolle in Polyethylenterephthalaten/Polyethylennaphthalat-Blends geschildert. Die UV-Eigenschaften von Flaschen werden ferner in JP-A 09302205 beschrieben.

30

Verbesserungsbedürftig sind vor allem bei Sichtteilen die optischen Eigenschaften insbesondere der Rohton und die Farbeffekte.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist demgemäß, Polymerblends zur Verfügung zu stellen, die eine Farbverbesserung, Rohtonverbesserung (Rohtonaufhellung) und

ein verbessertes Verarbeitungsverhalten beispielsweise bei der Herstellung von dünnwandigen Teilen aufweisen.

5 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch Polymerblends enthaltend eine Komponente ausgewählt aus der Gruppe Poly(ester)carbonat A, Pfpfopolymerisat B oder Mischungen hiervon, Polyalkylennaphthalat C sowie gegebenenfalls eine weitere Komponente D ausgewählt aus Vinyl(co)polymerisat D1, Polyalkylenterephthalat D2 oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus Polycarbonat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylenterephthalat kein Tetrafluor-
10 ethylenpolymer enthalten.

Erfindungsgemäß bevorzugt sind insbesondere Polymerblends enthaltend:

1. Polycarbonat, Polyalkylenterephthalat, vorzugsweise Polybutylenterephthalat,
15 und Polyalkylennaphthalat,
2. Polycarbonat, Pfpfopolymerisat und Polyalkylennaphthalat,
3. Pfpfopolymerisat und Polyalkylennaphthalat,
20
4. Pfpfopolymerisat, Polyalkylenterephthalat und Polyalkylennaphthalat oder
5. Polycarbonat und Polyalkylennaphthalat ausgenommen Tetrafluorethylenpolymerisat.
25

Die Pfpfopolymerisate können ganz oder teilweise durch Vinyl(co)polymerisate ersetzt werden.

Die genannten Polymerblends enthalten vorzugsweise 0,2 bis 99 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat. Besonders bevorzugt sind 0,4 bis 85 Gew.-Teile, ganz besonders bevorzugt sind 0,6 bis 75 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat. Die Polymerblends
30

können 1 bis 99,8 Gew.-Teile Polycarbonat A, Pfropfpolymerisat B oder Gemische hiervon enthalten. Bevorzugt sind 15 bis 99,6 Gew.-Teile, besonders bevorzugt sind 25 bis 99,4 Gew.-Teile.

- 5 Vinyl(co)polymerisat und Polyalkylenterephthalat sowie Gemische hiervon können mit bis zu 85 Gew.-Teilen in den Polymerblends enthalten sein. Bevorzugt sind 3 bis 80 Gew.-Teile, insbesondere 5 bis 75 Gew.-Teile. Die Summe der eingesetzten Komponenten A bis D beträgt 100 Gew.-Teile.

- 10 Für die Gruppe 1 sind folgende Mengen bevorzugt:

Polycarbonat 5-98 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 10-95 Gew.-Teile,
ganz besonders bevorzugt 15-80 Gew.-Teile;

- 15 Polyalkylenterephthalat 0-80 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 5-75 Gew.-Teile,
ganz besonders bevorzugt 15-75 Gew.-Teile, höchst
bevorzugt 20-70 Gew.-Teile;

Polyalkylennaphthalat 1-80 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 2-70 Gew.-Teile.

20

In Fällen, in denen die Polycarbonat/Polyalkylennaphthalat-Mischungen >0 Gew.-Teile Polyalkylenterephthalat enthalten, ist dieses vorzugsweise in Mengen von 5 bis 75 Gewichts-Teilen enthalten.

- 25 Für die Gruppe 2 sind folgende Mengen bevorzugt (Gew.-Teile):

		besonders bevorzugt	ganz besonders bevorzugt
Polycarbonat	5-98	10-95	20-90
Pfropfpolymerisat	1-80	3-60	5-40
Polyalkylennaphthalat	0,2-80	0,4-60	1-40
Vinyl(co)polymerisat	0-60	1-40	2-30

Für die Gruppe 3 sind folgende Mengen bevorzugt (Gew.-Teile):

		besonders bevorzugt	ganz besonders bevorzugt	höchst bevorzugt
Pfropfpolymerisat	1-80	3-60	5-40	
Polyalkylennaphthalat	0,2-80	0,4-60	1-40	
Vinyl(co)polymerisat/ Polyalkylenterephthalat	0-95	5-90	10-85	40-80

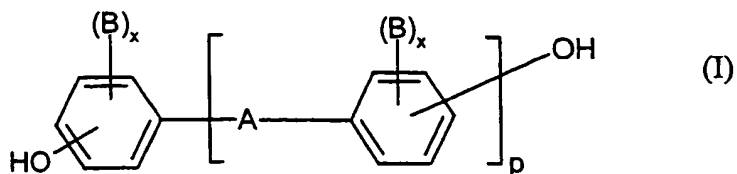
5 Ferner betrifft die vorliegende Erfindung auch die Verwendung der Polymerblends zur Herstellung von Formkörpern.

Komponente A

10 Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyester-carbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbe-
kannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe bei-
spielsweise Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Interscience
Publishers, 1964 sowie die DE-A 1 495 626, DE-A 2 232 877, DE-A 2 703 376, DE-
A 2 714 544, DE-A 3 000 610, DE-A 3 832 396; zur Herstellung aromatischer
15 Polyester-carbonate z.B. DE-A 3 077 934).

20 Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z.B. durch Umsetzung von Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit aro-
matischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalo-
geniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung
von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Ver-
wendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispiels-
weise Triphenolen oder Tetraphenolen.

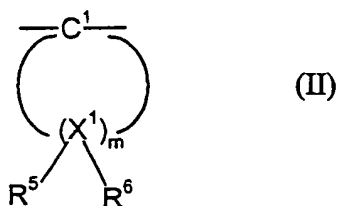
25 Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyester-carbonate sind vorzugsweise solche der Formel (I)



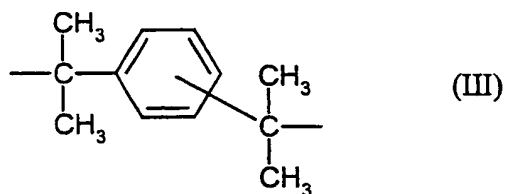
wobei

A eine Einfachbindung, C₁-C₅-Alkylen, C₂-C₅-Alkyliden, C₅-C₆-Cycloalky-
 5 den, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO₂-, C₆-C₁₂-Arylen, an das weitere aromatische
 gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können,

oder ein Rest der Formel (II) oder (III)



10



B jeweils Wasserstoff, C₁-C₁₂-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugs-
 15 weise Chlor und/oder Brom,

x jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

p 1 oder 0 sind, und

20

R⁵ und R⁶ für jedes X¹ individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff
 oder C₁-C₆-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,

X¹ Kohlenstoff und

m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe,
5 dass an mindestens einen Atom X¹, R⁵ und R⁶ gleichzeitig Alkyl sind.

Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenole, Bis-(hydroxyphenyl)-C₁-C₅-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C₅-C₆-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-
10 (hydroxyphenyl)-sulfone und α,α -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bisphenol-A, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3.3.5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenyl-sulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.
15

Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).
20

Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden.

25 Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate sind geeignete Kettenabbrecher beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder
30 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-OS 2 842 005 oder Monoalkylphenol bzw. Dialkylphenole

mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzenden Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-%, und
5 10 Mol-%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittelmolekulargewichte (M_w , gemessen z.B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmessung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 20 000 bis 80 000.

10

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise verzweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezogen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an dreifunktionellen oder mehr als dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei und mehr phenolischen Gruppen.
15

Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstellung erfindungsgemäßer Copolycarbonate gemäß Komponente A können auch 1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.% (bezogen auf die Gesamtmenge an einzusetzenden Diphenolen) Polydiorganosiloxane mit Hydroxy-aryloxy-Endgruppen eingesetzt werden. Diese sind bekannt (s. beispielsweise US-Patent 3 419 634) bzw. nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxan-haltiger Copolycarbonate wird z.B. in DE-OS 3 334 782 beschrieben.
20

Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsummen an Diphenolen, anderen als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannten Diphenole, insbesondere 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.
25

Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Polyester-carbonate sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Terephthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

- 5 Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

Bei der Herstellung von Polyester-carbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen als bifunktionelles Säurederivat mitverwendet.

10

Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyester-carbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch C_1 - C_{22} -Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische C_2 - C_{22} -Monocarbonsäurechloride in Betracht.

15

Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mole Diphenole und Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf Mole Dicarbonsäuredichloride.

20

Die aromatischen Polyester-carbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

- 25 Die aromatischen Polyester-carbonate können sowohl linear als auch in bekannter Weise verzweigt sein (siehe dazu ebenfalls DE-A 2 940 024 und DE-A 3 007 934).

30

Als Verzweigungsmittel können beispielsweise 3- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3',4,4'-Benzophenontetracarbonsäuretetra-chlorid, 1,4,5,8-Naphthalintetracarbonsäuretetra-chlorid oder Pyromellithsäuretetra-chlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% (bezogen auf eingesetzte Dicarbonsäuredichloride) oder 3- oder mehrfunktionelle Phenole, wie Phloro-

glucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten, 2,4,4-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-hydroxy-phenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methyl-phenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxyphenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl)-methyl]-benzol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-%, bezogen auf eingesetzte Diphenole, verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis zu 100 Mol-%, insbesondere bis zu 80 Mol-%, besonders bevorzugt bis zu 50 Mol-%, bezogen auf die Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen. Sowohl der Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.

Die relative Lösungsviskosität (η_{rel}) der aromatischen Polycarbonate und aromatischen Polyestercarbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,22 bis 1,3 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-Lösung bei 25°C).

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch untereinander eingesetzt werden.

Komponente B

Das kautschukmodifizierte Pfropfpolymerisat B umfasst ein statistisches (Co)polymerisat aus Monomeren gemäß B.1.1 und/oder B.1.2, sowie einem mit dem statistischen (Co)polymerisat aus B.1.1 und/oder B.1.2 gepfropften Kautschuk B.2, wobei die Herstellung von B in bekannter Weise nach einem Masse- oder Lösungs- oder Masse-Suspensions-Polymerisationsverfahren erfolgt, wie z.B. in den US-A-3 243 481, US-A-3 509 237, US-A-3 660 535, US-A-4 221 833 und US-A-4 239 863 beschrieben.

10

Beispiele für Monomere B.1.1 sind Styrol, α -Methylstyrol, halogen- oder alkylkernsubstituierte Styrole wie p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol, (Meth)acrylsäure-C₁-C₈-alkylester wie Methylmethacrylat, n-Butylacrylat und t-Butylacrylat. Beispiele für Monomere B.1.2 sind ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril, Methacrylnitril, (Meth)-Acrylsäure-C₁-C₈-alkylester wie Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat, Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren wie Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-maleinimid oder Mischungen davon.

15

Bevorzugte Monomere B.1.1 sind Styrol, α -Methylstyrol und/oder Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere B.1.2 sind Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und/oder Methylmethacrylat.

20

Besonders bevorzugte Monomere sind B.1.1 Styrol und B.1.2 Acrylnitril.

Für die kautschukmodifizierten Pfropfpolymerisate B geeignete Kautschuke B.2 sind beispielsweise Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, also solche auf Basis Ethylen/Propylen und gegebenenfalls Dien, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren- und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.

25

Bevorzugte Kautschuke B.2 sind Dienkautschuke (z.B. auf Basis Butadien, Isopren etc.) oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschu-

30

ken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß B.1.1 und B.1.2), mit der Maßgabe, dass die Glasübergangstemperatur der Komponente B.2 unterhalb 10°C, vorzugsweise unterhalb -10°C liegt. Besonders bevorzugt wird reiner Polybutadienkautschuk.

5

Die Komponente B kann, falls erforderlich und wenn dadurch die Kautschukeigenschaften der Komponente B.2 nicht beeinträchtigt werden, zusätzlich noch geringe Mengen, üblicherweise weniger als 5 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 2 Gew.-%, bezogen auf B.2, vernetzend wirkender ethylenisch ungesättigter Monomeren enthalten. Beispiele für solche vernetzend wirkenden Monomere sind Alkylendiol-di-(meth)-acrylate, Polyester-di-(meth)-acrylate, Divinylbenzol, Trivinylbenzol, Triallylcyanurat, Allyl-(meth)-acrylat, Diallylmaleat und Diallylfumarat.

10

Das kautschukmodifizierte Pfropfpolymerisat B wird erhalten durch Pfropfpolymerisation von 50 bis 99, bevorzugt 65 bis 98, besonders bevorzugt 75 bis 95 Gew.-Teilen eines Gemischs aus 50 bis 99, bevorzugt 60 bis 95 Gew.-Teilen Monomeren gemäß B.1.1 und 1 bis 50, bevorzugt 5 bis 40 Gew.-Teilen Monomeren gemäß B.1.2 in Gegenwart von 1 bis 50, vorzugsweise 2 bis 35, besonders bevorzugt 5 bis 25 Gew.-Teilen der Kautschukkomponente B.2, wobei die Pfropfpolymerisation nach einem Masse- oder Lösungs- oder Masse-Suspensions-Polymerisationsverfahren durchgeführt wird.

15

20

Wesentlich bei der Herstellung der kautschukmodifizierten Pfropfpolymerisate B ist, dass die Kautschukkomponente B.2 vor der Pfropfpolymerisation im Gemisch der Monomeren B.1.1 und/oder B.1.2 in gelöster Form vorliegt. Die Kautschukkomponente B.2 darf also weder so stark vernetzt sein, dass eine Lösung in B.1.1 und/oder B.1.2 unmöglich wird, noch darf B.2 zu Beginn der Pfropfpolymerisation bereits in Form diskreter Teilchen vorliegen. Die für die Produkteigenschaften von B wichtige Teilchenmorphologie und zunehmende Vernetzung von B.2 bildet sich erst im Verlauf der Pfropfpolymerisation aus (siehe hierzu beispielsweise Ullmann, Encyclopädie der technischen Chemie, Band 19, S. 284 ff., 4. Auflage 1980).

25

30

Das statistische Copolymerisat aus B.1.1 und B.1.2 liegt üblicherweise im Polymerisat B zu einem Teil auf dem Kautschuk B.2 auf oder eingefropft vor, wobei dieses Pfropfmischpolymerisat diskrete Teilchen im Polymerisat B ausbildet. Der Anteil des auf- oder eingefropften Copolymerisats aus B.1.1 und B.1.2 am gesamten Copolymerisat aus B.1.1 und B.1.2 - also die Pfropfausbeute (= Gewichtsverhältnis der tatsächlich gefropften Pfropfmonomeren zu den insgesamt verwendeten Pfropfmonomeren x 100, angegeben in %) - sollte dabei 2 bis 40 %, vorzugsweise 3 bis 30 %, besonders bevorzugt 4 bis 20 % betragen.

10

Der mittlere Teilchendurchmesser der resultierenden gefropften Kautschukteilchen (ermittelt durch Auszählung an elektronenmikroskopischen Aufnahmen) liegt im Bereich von 0,5 bis 5 μm , vorzugsweise 0,8 bis 2,5 μm .

15

Neben der über Masse-Polymerisation hergestellten Pfropfpolymerisate können die erfindungsgemäßen Formmassen auch über Emulsionspolymerisation hergestelltes Pfropfpolymerisat enthalten. Die Beschreibung der Pfropfpolymerisate entspricht vorzugsweise derjenigen der über Massepolymerisation hergestellten, sind jedoch mittels Emulsionspolymerisation hergestellt.

20

Der mittlere Teilchendurchmesser (d_{50} -Wert) der Pfropfgrundlage im Emulsionspfropfpolymerisat beträgt im allgemeinen 0,05 bis 5 μm , vorzugsweise 0,10 bis 0,5 μm besonders bevorzugt 0,20 bis 0,40 μm . Der Gelanteil der Pfropfgrundlage beträgt mindestens 30 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 40 Gew.-%.

25

Das ABS-Pfropfpolymer ist besonders bevorzugtes "Emulsions-Pfropfpolymer".

30

Das Gewichtsverhältnis von mittels Massepolymerisation hergestelltes Pfropfpolymer gemäß Komponente B der vorliegenden Erfindung zu dem mittels Emulsionspolymerisation hergestellten Pfropfpolymer beträgt 100:0 bis 50:50, vorzugsweise 80:20 bis 60:40.

Komponente C

Als Komponente C werden Polyalkylennaphthalate eingesetzt (vgl. z.B. EP-A-
5 0846729). Hierbei handelt es sich um einen Polyester, dessen Eigenschaften ähnlich
denen der Polyalkylenterephthalate sind.

Die Polyalkylennaphthalate der Komponente C können sowohl Homo- als auch
Copolymere sein. Bei den Polyalkylennaphthalaten der Komponente C handelt es
10 sich um Reaktionsprodukte der ggf. substituierten Naphtalindicarbonsäure oder ihren
reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, mit aliphatischen,
cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen sowie um Mischungen dieser Reak-
tionsprodukte. Beispiele für Substituenten an der Naphtalindicarbonsäure sind
Alkylgruppen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkylarylgruppen sowie Halogene.

15 Die Polyalkylennaphthalate können neben Naphthalindicarbonsäure bis zu
98 Mol-%, vorzugsweise bis zu 70 Mol-%, Reste anderer aromatischer oder cycloali-
phatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren
mit 4 bis 12 C-Atomen, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Tereph-
20 thalsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure,
Azelainsäure, Cyclohexandiessigsäure enthalten.

Die bevorzugten Polyalkylennaphthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butan-
diol-1,4-Resten bis zu 20 Mol-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol-%, andere aliphatische
25 Diole mit 2 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphahtische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen
enthalten, z.B. Ethandiol, Butandiol, Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neo-
pentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethyl-
pentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethyl-
hexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-(β -hydroxyethoxy)-
30 benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-

cyclobutan, 2,2-Bis-(4- β -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxy-propoxyphenyl)-propan (DE-A 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

5 Die Polyalkylennaphthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-A 1 900 270 und US-A 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

10 Besonders bevorzugt sind Polyalkylennaphthalate, die allein aus Naphthalindicarbonsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylennaphthalate.

15 Mischungen von Polyalkylennaphthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylennaphthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylennaphthalat.

20 Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylennaphthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylennaphthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen.

25 Komponente D1

Erfindungsgemäß einsetzbare Vinyl-(Co)polymerisate gemäß Komponente D1 sind solche aus wenigstens einem Monomeren aus der Reihe: Styrol, α -Methylstyrol und/oder kernsubstituierten Styrolen, C₁-C₈-Alkylmethacrylat, C₁-C₈-Alkylacrylat
30 (D.1.1) mit wenigstens einem Monomeren aus der Reihe: Acrylnitril, Methacrylnitril,

C₁-C₈-Alkylmethacrylat, C₁-C₈-Alkylacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituierte Maleinimide (D.1.2).

5 C₁-C₈-Alkylacrylate bzw. C₁-C₈-Alkylmethacrylate sind Ester der Acrylsäure bzw. Methacrylsäure und einwertiger Alkohole mit 1 bis 8 C-Atomen. Besonders bevorzugt sind Methacrylsäuremethylester, -ethylester und -propylester. Als besonders bevorzugter Methacrylsäureester wird Methylmethacrylat genannt.

10 Thermoplastische (Co)polymerisate mit einer Zusammensetzung gemäß Komponente D1 können bei der Pfropfpolymerisation zur Herstellung der Komponente B als Nebenprodukt entstehen, besonders dann, wenn große Mengen Monomere auf kleine Mengen Kautschuk gepfropft werden. Die erfindungsgemäß einzusetzende Menge an (Co)polymerisat D1 bezieht diese Nebenprodukte der Pfropfpolymerisation nicht mit ein.

15 Die (Co)polymerisate gemäß Komponente D1 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei.

20 Die thermoplastischen (Co)polymerisate D1 enthalten 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 95 Gew.-Teile D.1.1 und 50 bis 2, vorzugsweise 40 bis 5 Gew.-Teile D.1.2.

25 Besonders bevorzugte (Co)polymerisate D1 sind solche aus Styrol mit Acrylnitril und gegebenenfalls mit Methylmethacrylat, aus α -Methylstyrol mit Acrylnitril und gegebenenfalls mit Methylmethacrylat, oder aus Styrol und α -Methylstyrol mit Acrylnitril und gegebenenfalls mit Methylmethacrylat.

30 Die Styrol-Acrylnitril-Copolymerisate gemäß Komponente D1 sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation herstellen. Die Copolymerisate gemäß Komponente D1 besitzen vorzugsweise Molekulargewichte \bar{M}_w (Gewichts-

mittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation) zwischen 15 000 und 200 000.

5 Besonders bevorzugte erfindungsgemäße Copolymerisate D1 sind auch statistisch aufgebaute Copolymerisate aus Styrol und Maleinsäureanhydrid, die durch eine kontinuierliche Masse oder Lösungspolymerisation bei unvollständigen Umsätzen aus dem entsprechenden Monomeren hergestellt werden können.

10 Die Anteile der beiden Komponenten der erfindungsgemäß geeigneten statistisch aufgebauten Styrol-Maleinsäureanhydrid-Copolymeren können innerhalb weiter Grenzen variiert werden. Der bevorzugte Gehalt an Maleinsäureanhydrid liegt bei 5 bis 25 Gew.-%.

15 Die Molekulargewichte (Zahlenmittel \bar{M}_n) der erfindungsgemäß geeigneten statistisch aufgebauten Styrol-Maleinsäureanhydrid-Copolymeren gemäß Komponente B können über einen weiten Bereich variieren. Bevorzugt ist der Bereich von 60 000 bis 200 000. Bevorzugt ist für diese Produkte eine Grenzviskosität von 0,3 bis 0,9 (gemessen in Dimethylformamid bei 25°C; siehe hierzu Hoffmann, Krömer, Kuhn, Polymeranalytik I, Stuttgart 1977, Seite 316 ff.).

20 Anstelle von Styrol können die Vinyl(Co)polymerisate D1 auch kernsubstituierte Styrole wie p-Methylstyrol, Vinyltoluol, 2,4-Dimethylstyrol und andere substituierte Styrole wie α -Methylstyrol, die gegebenenfalls substituiert sein können, enthalten.

25 Komponente D2

Die Polyalkylenterephthalate der Komponente D2 sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen
30 Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

5

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexan-diessigsäure.

10

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol-%, andere aliphatische Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphatische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-(β -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- β -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-A 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

15

20

Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-A 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

25

Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol

30

und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylen-terephthalate.

5 Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

10 Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (s. z.B. Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

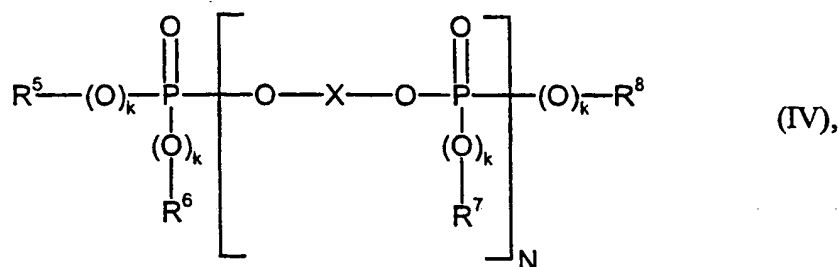
15 Additive

Die erfindungsgemäßen Polymerblends können übliche Additive, wie Flamm-
schutzmittel, Anti-Dripping-Mittel, feinstteilige anorganische Verbindungen, Gleit-
und Entformungsmittel, Nukleierungsmittel, Antistatika, Stabilisatoren, Füll- und
20 Verstärkungsstoffe sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

Die erfindungsgemäßen Polymerblends können im allgemeinen 0,01 bis 20 Gew.-%, bezogen auf die Gesamt-Masse, Flammenschutzmittel enthalten. Beispielhaft werden als Flammenschutzmittel organische Halogenverbindungen wie Decabrombisphenyl-
25 ether, Tetrabrombisphenol, anorganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie Melamin, Melaminformaldehyd-Harze, anorganische Hydroxidverbindungen wie Mg- Al-hydroxid, anorganische Verbindungen wie Aluminiumoxide, Titandioxide, Antimonoxide, Barium-metaborat, Hydroxo-antimonat, Zirkon-oxid, Zirkon-hydroxid, Molybdenoxid, Ammoniummolybdat,
30 Zinnborat, Ammoniumborat, Bariummetaborat und Zinnoxid sowie Siloxanverbindungen genannt.

Als Flammschutzverbindungen können ferner Phosphorverbindungen, wie sie in EP-A 0363608, EP-A 0345522 oder EP-A 0640655 beschrieben sind, eingesetzt werden.

- 5 Solche Phosphorverbindungen sind beispielsweise Phosphor-Verbindungen der Formel (IV)



in welcher

10

R^5 , R^6 , R^7 und R^8 , unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes C_1 - C_8 -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C_1 - C_4 -Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom, substituiertes C_5 - C_6 -Cycloalkyl, C_6 - C_{30} -Aryl oder C_7 - C_{12} -Aralkyl bedeuten.

15

Bevorzugt stehen R^5 , R^6 , R^7 und R^8 unabhängig voneinander für C_1 - C_4 -Alkyl, Phenyl, Naphthyl oder Phenyl- C_1 - C_4 -alkyl. Die aromatischen Gruppen R^5 , R^6 , R^7 und R^8 können ihrerseits mit Halogen- und/oder Alkylgruppen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder C_1 - C_4 -Alkyl substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind

20 Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie die entsprechenden bromierten und chlorierten Derivate davon.

X in der Formel (IV) bedeutet einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen. Dieser leitet sich von Diphenolen ab wie z.B.

25 Diphenylphenol, Bisphenol A, Resorcin oder Hydrochinon oder deren chlorierten oder bromierten Derivaten.

k in der Formel (IV) kann, unabhängig voneinander, 0 oder 1 sein, vorzugsweise ist n gleich 1.

5 N steht für Werte von 0 bis 30, vorzugsweise für 0 bzw. einen durchschnittlichen Wert von 0,3 bis 20, besonders bevorzugt 0,5 bis 10, insbesondere 0,5 bis 6.

10 Mischungen aus Phosphorverbindungen der Formel (IV) enthalten vorzugsweise 10 bis 90 Gew.-%, vorzugsweise 12 bis 40 Gew.-%, wenigstens einer Monophosphorverbindung der Formel (IV) und wenigstens einer oligomeren Phosphorverbindung beziehungsweise eines Gemisches von oligomeren Phosphorverbindungen in Mengen von 10 bis 90 Gew.-%, vorzugsweise 60 bis 88 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge an Phosphorverbindungen, eingesetzt.

15 Monophosphorverbindungen der Formel (IV) sind insbesondere Tributylphosphat, Tris-(2-chlorethyl)-phosphat, Tris-(2,3-dibrompropyl)-phosphat, Triphenylphosphat, Trikresylphosphat, Diphenylkresylphosphat, Diphenyloctylphosphat, Diphenyl-2-ethylkresylphosphat, Tri-(isopropylphenyl)-phosphat, halogensubstituierte Arylphosphate, Methylphosphonsäuredimethylester, Methylphosphonsäurediphenylester, 20 Phenylphosphonsäurediethylester, Triphenylphosphinoxid oder Trikresylphosphinoxid.

Die Mischungen aus Monomeren und oligomeren Phosphorverbindungen der Formel (IV) weisen durchschnittliche N-Werte von 0,3 bis 20, bevorzugt 0,5 bis 10, insbesondere von 0,5 bis 6 auf.

Die Phosphorverbindungen gemäß Formel (IV) sind bekannt (vgl. z.B. EP-A 0363608, EP-A 0640655, EP-A 0542522) oder lassen sich nach bekannten Methoden in analoger Weise herstellen (z.B. Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, 30 Bd. 18, S. 301 ff. 1979; Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, Bd. 12/1, S. 43; Beilstein Bd. 6, S. 177).

Die erfindungsgemäßen Polymerblends können gegebenenfalls von Verbindungen der Formel (IV) verschiedene Flammenschutzmittel in einer Menge bis zu 20 Gew.-
5 Teilen enthalten. Bevorzugt sind synergistisch wirkende Flammenschutzmittel. Beispielshaft werden als weitere Flammenschutzmittel organische Halogenverbindungen wie Decabrombisphenylether, Tetrabrombisphenol, anorganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie Melamin, Melaminformaldehyd-Harze oder Siloxanverbindungen genannt. Die erfindungsgemäßen Polymerblends können gegebenenfalls von den anorganischen Verbindungen abwei-
10 chende anorganische Substanzen enthalten wie beispielsweise anorganische Hydroxidverbindungen wie Mg-, Al-hydroxid, anorganische Verbindungen wie Aluminiumoxid, Antimonoxide, Bariummetaborat, Hydroxoantimonat, Zirkoniumoxid, Zirkonhydroxid, Molybdänoxid, Ammoniummolybdat, Zinkborat, Ammoniumborat, Bariummetaborat und Zinnoxid.

15 Ferner können die erfindungsgemäßen thermoplastischen Polymerblends feinstteilige anorganische Verbindungen enthalten, die sich günstig auf die Flammsechutzeigenschaften der erfindungsgemäßen Polymerblends auswirken. Diese anorganischen Verbindungen umfassen Verbindungen eines oder mehrerer Metalle der 1. bis
20 5. Hauptgruppe oder der 1. bis 8. Nebengruppe des Periodensystems, bevorzugt der 2. bis 5. Hauptgruppe oder der 4. bis 8. Nebengruppe, besonders bevorzugt der 3. bis 5. Hauptgruppe oder der 4. bis 8. Nebengruppe mit den Elementen Sauerstoff, Schwefel, Bor, Phosphor, Kohlenstoff, Stickstoff, Wasserstoff und/oder Silicium.

25 Bevorzugte Verbindungen sind beispielsweise Oxide, Hydroxide, wasserhaltige Oxide, Sulfate, Sulfite, Sulfide, Carbonate, Carbide, Nitrate, Nitrite, Nitride, Borate, Silikate, Phosphate, Hydride, Phosphite oder Phosphonate.

Bevorzugte feinstteilige anorganischen Verbindungen sind beispielsweise TiN, TiO₂,
30 SnO₂, WC, ZnO, Al₂O₃, AlO(OH), ZrO₂, Sb₂O₃, SiO₂, Eisenoxide, NaSO₄, BaSO₄, Vanadiumoxide, Zinkborat, Silicate wie Al-Silikate, Mg-Silikate, ein, zwei, drei-

dimensionale Silikate, Mischungen und dotierte Verbindungen sind ebenfalls verwendbar. Des Weiteren können diese nanoskaligen Partikel mit organischen Molekülen oberflächenmodifiziert sein, um eine bessere Verträglichkeit mit den Polymeren zu erzielen. Auf diese Weise lassen sich hydrophobe oder hydrophile Oberflächen erzeugen.

Die durchschnittlichen Teilchendurchmesser sind kleiner gleich 200 nm, bevorzugt kleiner gleich 150 nm, insbesondere 1 bis 100 nm.

Teilchengröße und Teilchendurchmesser bedeutet immer den mittleren Teilchendurchmesser d_{50} , ermittelt durch Ultrazentrifugenmessungen nach W. Scholtan et al. Kolloid-Z. und Z. Polymere 250 (1972), S. 782 bis 796.

Die anorganischen Verbindungen können als Pulver, Pasten, Sole, Dispersionen oder Suspensionen vorliegen. Durch Ausfällen können aus Dispersionen, Sole oder Suspensionen Pulver erhalten werden.

Die Pulver können nach üblichen Verfahren in die thermoplastischen Kunststoffe eingearbeitet werden, beispielsweise durch direktes Kneten oder Extrudieren der Bestandteile der Formmasse und den feinstteiligen anorganischen Pulvern. Bevorzugte Verfahren stellen die Herstellung eines Masterbatch, z.B. in Flammschutzadditiven, anderen Additiven, Monomeren, Lösungsmitteln, in Komponente A oder die Cofällung von Dispersionen der Komponenten B oder C mit Dispersionen, Suspensionen, Pasten oder Solen der feinstteiligen anorganischen Materialien dar.

Die thermoplastischen Polymerblends können anorganische Füll- und Verstärkungsmaterialien wie Glasfasern, gegebenenfalls geschnitten oder gemahlen, Glasperlen, Glaskugeln, blättchenförmiges Verstärkungsmaterial, wie Kaolin, Talk, Glimmer, Silicate, Quarz, Talkum, Titandioxid, Wollastonit, Mika, Kohlefasern oder deren Mischung enthalten. Vorzugsweise werden als Verstärkungsmaterial geschnittene oder gemahlene Glasfasern eingesetzt. Bevorzugte Füllstoffe, die auch verstärkend

wirken können sind Glaskugeln, Glimmer, Silikate, Quarz, Talkum, Titandioxid, Wollastonit

Die gefüllten bzw. verstärkten Polymerblends können bis zu 60, vorzugsweise 10 bis
5 40 Gew.-%, bezogen auf die gefüllte bzw. verstärkte Formmasse, Füll- und/oder Verstärkungsstoffe enthalten.

Weiterhin können fluorierte Polyolefine zugesetzt werden. Die fluorierten Polyolefine sind hochmolekular und besitzen Glasübergangstemperaturen von über -30°C , in
10 der Regel von über 100°C , Fluorgehalte, vorzugsweise von 65 bis 76, insbesondere von 70 bis 76 Gew.-%, mittlere Teilchendurchmesser d_{50} von 0,05 bis 1 000 μm , vorzugsweise 0,08 bis 20 μm . Im allgemeinen haben die fluorierten Polyolefine E eine Dichte von 1,2 bis 2,3 g/cm^3 .

15 Bevorzugte fluorierte Polyolefine sind Polytetrafluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Tetrafluorethylen/Hexafluorpropylen- und Ethylen/Tetrafluorethylen-Copolymerisate.

Die fluorierten Polyolefine sind bekannt (vgl. EP-A 0640655).

20 Erfindungsgemäß werden die fluorierten Polyolefine E in Form spezieller Zubereitungen eingesetzt:

als koagulierte Mischung mit mindestens einer der Komponenten A bis C, wobei das
25 fluorierte Polyolefin E bzw. Polyolefingemisch als Emulsion mit mindestens einer Emulsion der Komponenten A bis C gemischt und anschließend koaguliert wird

oder

30 als Präcompound mit mindestens einer der Komponenten A bis C, wobei die fluorierten Polyolefine E als Pulver mit einem Pulver oder einem Granulat

mindestens einer der Komponenten A bis C vermischt und in der Schmelze, im allgemeinen bei Temperaturen von 208°C bis 330°C in den üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extruder oder Doppelwellenschnecken, compoundiert wird.

- 5 Geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsionen sind handelsübliche Produkte und werden beispielsweise von der Firma DuPont als Teflon® 30 N angeboten.

Die Erfindung umfasst auch ein Verfahren zur Herstellung der Polymerblends.

- 10 Die erfindungsgemäßen Polymerblends, enthaltend Komponenten A bis E, werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert oder schmelzextrudiert, wobei die fluorierten Polyolefine vorzugsweise in Form der bereits erwähnten
15 koagulierten Mischung eingesetzt werden.

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

20

- Die Polymerblends der vorliegenden Erfindung können zur Herstellung von Formkörpern jeder Art verwendet werden. Insbesondere können Formkörpern durch Spritzguss hergestellt werden. Beispiele für herstellbare Formkörper sind: Gehäuse-
teile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte, wie Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer,
25 für Büromaschinen, wie Computer, Drucker, Monitore oder Abdeckplatten für den Bausektor und Teile für den Kfz-Sektor. Sie werden außerdem auf dem Gebiet der Elektrotechnik eingesetzt, weil sie sehr gute elektrische Eigenschaften haben.

- Besonders geeignet sind die Polymerblends zur Herstellung von dünnwandigen
30 Formteilen (z.B. Datentechnik-Gehäuseteile), wo besonders hohe Ansprüche an

Kerbschlagzähigkeit und Spannungsrissbeständigkeit der eingesetzten Kunststoffe gestellt werden.

5 Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formkörpern durch Blasformen oder durch Tiefziehen aus vorher hergestellten Platten oder Folien.

Im Folgenden wird die Erfindung anhand einiger Beispiele näher erläutert.

1. Definition der verwendeten Substanzen

Komponente	Bezeichnung
A1	Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,26 gemessen in CH ₂ Cl ₂ als Lösungsmittel bei 25°C und in einer Konzentration von 0,5 g/100ml
A2	Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,32 gemessen in CH ₂ Cl ₂ als Lösungsmittel bei 25°C und in einer Konzentration von 0,5 g/100ml
B1	Pfropfpolymerisat von 40 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 73:27 auf 60 Gew.-Teile teilchenförmig vernetztem Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50}=0,28\text{ }\mu\text{m}$), hergestellt durch Emulsionspolymerisation
B2	Pfropfpolymerisat von 50 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 72:28 auf 50 Gew.-Teile einer Mischung im Verhältnis 1:1 aus einem a) teilchenförmig vernetzten Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50}=0,4\text{ }\mu\text{m}$) sowie aus einem b) teilchenförmig vernetzten Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50}=0,1\text{ }\mu\text{m}$), hergestellt durch Emulsionspolymerisation
C1	Polyethylenphthalat mit einer Vicat B120 (ISO 306) Temperatur von 118°C und einer Schmelzvolumenrate (ISO 1133 270°C, 5kg) von 12,1 cm ³ /10 min
C2	Polyethylenphthalat-co-terephthalat mit einer Vicat B120 (ISO 306) Temperatur von 114°C und einer Schmelzvolumenrate (ISO 1133, 270°C, 5kg) von 10,7 cm ³ /10 min
D1	Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit einem Styrol/Acrylnitril-Verhältnis von 72:28 und einer Grenzviskosität von 0,55 dl/g (Messung in Dimethylformamid bei 20°C)
D2	Polybutylenterephthalat mit einer Viskositätszahl J nach DIN

Komponente**Bezeichnung**53 728/3 von 140 cm³/g und mit einer Vicat B120 (ISO 306)

Temperatur von 170°C

E

Pentaeritritetrastearat

Die Bestimmung der Zugfestigkeit erfolgt nach ISO 527.

Die Bestimmung der Reißdehnung erfolgt nach ISO 527.

Die Bestimmung der Schmelzvolumenrate erfolgt nach ISO 1133.

5

Der Rohton wurde visuell beurteilt. Ausgehend vom Vergleichsbeispiel als Kontrolle (Wert "0") wurde die Aufhellung (+, ++) der erfindungsgemäßen Beispiele beurteilt.

2. Tabellen

10

Tab. 1: Formmassen und ihre Eigenschaften

	Vergleich	Erfindungsgemäß 1	Erfindungsgemäß 2
A1 Gew.-Teile	70	65	65
B1 Gew.-Teile	13	13	13
C1 Gew.-Teile	-	5	-
C2 Gew.-Teile	-	-	5
D1 Gew.-Teile	17	17	17
E Gew.-Teile	0,5	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit Izod 23°C kJ/m ²	56	55	55
Kritische Temp. °C	<-30	<-30	<-30
Schmelzvolumenrate cm ³ /10 min.	8,6	10,7	13,3
Zugfestigkeit MPa	2180	2183	2187
Reißdehnung %	88	122	123
Rohton (visuelle Beurteilung)	0	+	+

- Die erfindungsgemäßen Formmassen zeichnen sich durch eine günstige Eigenschaftskombination aus verbesserter Fließfähigkeit, mechanischen Eigenschaften und Rohton aus. Überraschenderweise werden durch die gegenüber dem Stand der Technik hinzugefügten Komponenten C1 bzw. C2 der Rohton deutlich verbessert, wobei
- 5 im Gegensatz zu Farbpigmenten die mechanischen Eigenschaften sich zusätzlich noch verbessern. Auch nimmt die Fließfähigkeit, hier in Form der Schmelzvolumenrate, zu.

Tab. 2: Formmassen und ihre Eigenschaften

10

	Vergleich	Erf. 3	Erf. 4	Erf. 5	Erf. 6
A1 Gew.-Teile	60	60	60	60	60
B1 Gew.-Teile	20	20	20	20	20
C1 Gew.-Teile	-	20	10	-	-
C2 Gew.-Teile	-	-	-	20	10
D1 Gew.-Teile	20	-	10	-	10
E Gew.-Teile	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit (Izod 23 °C) kJ/m ²	56	51	59	59	55
Kritische Temp. °C	<-30	<-30	<-30	<-30	<-30
Vicat-Temp. VSTB 120 ISO306 °C	122	130	127	125	128
Reißdehnung %	115	115	117	116	117
Rohton (visuelle Beurteilung)	0	++	+	++	+

- Die erfindungsgemäßen Formmassen zeichnen sich durch eine günstige Eigenschaftskombination mechanischer und thermischer Eigenschaften sowie des Rohtons aus. Überraschenderweise werden durch die gegenüber dem Stand der Technik hinzugefügten Komponenten C1 bzw. C2 der Rohton deutlich verbessert und zwar
- 15 unter Erhalt bzw. Verbesserung der mechanischen Eigenschaften, wie Kerbschlagzähigkeit und Reißdehnung. Zusätzlich läßt sich eine für viele Anwendungen vorteilhafte Erhöhung der Vicat-Temperatur erzielen.

Tab. 3: Formmassen und ihre Eigenschaften

	Vergleich	Erfindungsgemäß 7
B2 Gew.-Teile	30	30
D1 Gew.-Teile	70	70
C2 Gew.-Teile	-	2
E Gew.-Teile	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit Izod 23°C kJ/m ²	8	10
Schmelzvolumenrate cm ³ /10min.	26	25
Reißdehnung %	17	17
Rohton (visuelle Beurteilung)	0	+

Die erfindungsgemäßen Formmassen zeichnen sich durch eine günstige Eigenschaftskombination aus verbessertem Rohton und Fließfähigkeit bzw. mechanischen Eigenschaften aus. Überraschenderweise werden durch die gegenüber dem Stand der Technik hinzugefügten Komponenten C1 bzw. C2 der Rohton deutlich verbessert (+) unter Beibehaltung der mechanischen und rheologischen Eigenschaften, wie Kerbschlagzähigkeit bzw. Schmelzvolumenrate.

10

Tab. 4: Formmassen und ihre Eigenschaften

	Vergleich	Erf. 8	Erf. 9
A2 Gew.-Teile	40	40	40
D2 Gew.-Teile	60	30	-
C1 Gew.-Teile	-	30	60
E Gew.-Teile	0,5	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit Izod 23°C kJ/m ²	7	7	7
Reißdehnung %	134	164	159
Perlglanzeffekt (visuelle Beurteilung)	0	+	++

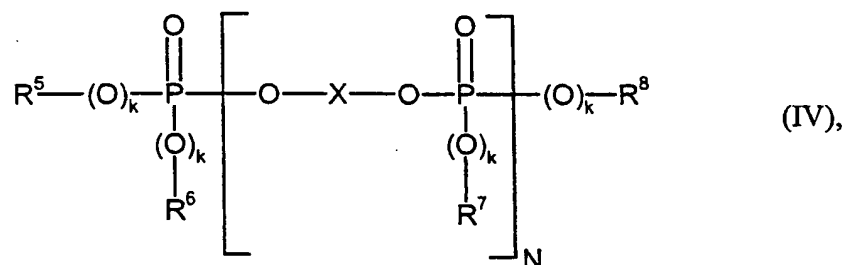
Die erfindungsgemäßen Formmassen weisen einen sehr schönen Perlglanzeffekt auf. Unter Beibehaltung der Kerbschlagzähigkeit und Verbesserung der Reißdehnung konnten aus dem Material erfolgreich Gehäuse für Mobiltelefone hergestellt werden.

15

Patentansprüche

1. Polymerblends enthaltend eine Komponente ausgewählt aus der Gruppe Poly-
5 (ester)carbonat A, Pffropfpolymerisat B oder Mischungen hiervon, als zweite
Komponente Polyalkylennaphthalat C sowie gegebenenfalls eine weitere
Komponente D ausgewählt aus der Gruppe aus Vinyl(co)polymerisat D1,
Polyalkylenterephthalat D2 oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus
Polycarbonat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylentereph-
10 thalat kein Tetrafluorethylenpolymerisat enthalten.
2. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie 0,2 bis
99 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat enthalten, wobei die Summe der Ge-
wichtsteile der Komponenten A + B + C + D 100 ergibt.
- 15 3. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie 0,4 bis
85 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat enthalten, wobei die Summe der Ge-
wichtsteile der Komponenten A + B + C + D 100 ergibt.
- 20 4. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie 0,6 bis
75 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat enthalten, wobei die Summe der Ge-
wichtsteile der Komponenten A + B + C + D 100 ergibt.
- 25 5. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Poly-
carbonat, Polyalkylenterephthalat und Polyalkylennaphthalat enthalten.
6. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Poly-
carbonat, Pffropfpolymerisat und Polyalkylennaphthalat enthalten.

7. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Pfropf-
polymerisat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylentereph-
thalat enthalten.
- 5 8. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Poly-
carbonat und Polyalkylennaphthalat, ausgenommen Tetrafluorethylenpoly-
merisat enthalten.
9. Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet,
10 dass sie als Polyalkylennaphthalat Polyethylennaphthalat und/oder Poly-
butylennaphthalat enthalten.
10. Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet,
15 dass die Pfropfgrundlage des Pfropfpolymerisats B ausgewählt ist aus min-
destens einem Kautschuk aus der Gruppe der Dienkautschuke, EP(D)M-
Kautschuke, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren- und Ethylen/Vinyl-
acetat-Kautschuke.
11. Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet,
20 dass sie mindestens einen Zusatz aus der Gruppe der Flammenschutzmittel,
Stabilisatoren, Pigmente, Entformungsmittel, Fließhilfsmittel und/oder Anti-
statika enthalten.
12. Polymerblends nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass sie als
25 Flammenschutzmittel Phosphate gemäß Formel (IV) enthalten



in welcher

5 R⁵, R⁶, R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes C₁-C₈-Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, und/oder Halogen, substituiertes C₅-C₆-Cycloalkyl, C₆-C₃₀-Aryl oder C₇-C₁₂-Aralkyl bedeuten,

X einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen bedeutet,

10 k unabhängig voneinander 0 oder 1 sein kann und

N für Werte von 0 bis 30 steht.

15 13. Verwendung der Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 11 zur Herstellung von Formkörpern.

20 14. Formkörper, insbesondere Gehäuseteile, Abdeckplatten und Teile für den Kfz-Sektor, dadurch gekennzeichnet, dass sie unter Verwendung von Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 12 hergestellt werden.

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
5. April 2001 (05.04.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/23474 A3

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C08L 69/00,
67/02, 51/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/09015

(22) Internationales Anmeldedatum:
15. September 2000 (15.09.2000)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
199 46 323.9 28. September 1999 (28.09.1999) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WARTH, Holger
[DE/DE]; Pommernallee 18, 41539 Dormagen (DE).
WITTMANN, Dieter [DE/DE]; Ernst-Ludwig-Kirch-
ner-Str. 41, 51375 Leverkusen (DE). ALBERTS,
Heinrich [DE/DE]; Schulstr. 1 a, 51519 Odenthal (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-
SELLSCHAFT; 51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU,
CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM,
HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK,
LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX,
MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL,
TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eura-
sisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI,
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen
Recherchenberichts: 1. November 2001

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: POLYMER BLENDS CONTAINING MODIFIED POLYESTERS

(54) Bezeichnung: POLYMERBLENDS ENTHALTEND MODIFIZIERTE POLYESTER

(57) Abstract: The present invention relates to polymer blends containing a component selected from the group poly(ester)carbonate, graft polymers or mixtures thereof. Said blends also contain polyalkylene naphthalate as the second component and optionally an additional component selected from the group of vinyl (co)polymers, polyalkylene terephthalate or mixtures thereof, whereby mixtures of polycarbonate, polyalkylene naphthalate and optionally polyalkylene terephthalate do not contain a tetra fluor ethylene polymer.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft Polymerblends, enthaltend eine Komponente ausgewählt aus der Gruppe Poly(ester)carbonate, Pfropfpolymerisate oder Mischungen hiervon, als zweite Komponente Polyalkylennaphthalat sowie gegebenenfalls eine weitere Komponente ausgewählt aus der Gruppe aus Vinyl(co)polymerisate, Polyalkylenterephthalate oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus Polycarbonat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylenterephthalat kein Tetrafluorethylenpolymerisat enthalten.

WO 01/23474 A3

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08L69/00 C08L67/02 C08L51/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, PAJ

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 856 884 A (SAKAI K ET AL) 24 December 1974 (1974-12-24) page 1, column 1, line 1 - line 25; claims 1-8	1-4,8,9, 11-14
X	--- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 04, 30 April 1997 (1997-04-30) & JP 08 325444 A (MITSUBISHI CHEM CORP), 10 December 1996 (1996-12-10) abstract	1-5,8,9, 13
X	--- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 001 (C-1014), 5 January 1993 (1993-01-05) & JP 04 239529 A (TEIJIN LTD), 27 August 1992 (1992-08-27) abstract --- -/--	1-4,8,9, 13

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

8 January 2001

Date of mailing of the international search report

01.06.2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

DECOCKER, L

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/09015

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; ANON.: "Poly(ethylene naphthalenedicarboxylate)/ polycarbonate blends" retrieved from STN Database accession no. 107:237778 XP002156621 abstract & RES. DISCL. (1987), 283, 667-9,	1-4, 6-10, 13
X	--- DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; NAKAMURA, YOSHITSUGU ET AL: "Polyester molding compositions with good color stability" retrieved from STN Database accession no. 84:60505 XP002156622 abstract & JP 50 067355 A (TEIJIN, LTD., JAPAN) 6 June 1975 (1975-06-06)	1-6, 9-14
X	--- DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; UENO, MAKOTO ET AL: "Resin compositions to give molded articles with pearllike luster" retrieved from STN Database accession no. 82:141098 XP002156623 abstract & JP 49 129748 A (TEIJIN CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 12 December 1974 (1974-12-12) -----	1-4, 8, 9, 13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP00/09015

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

SEE SUPPLEMENTAL SHEET

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1-6, 8-14

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

ADDITIONAL MATTER

PCT/ISA/210

The International Searching Authority has found that this international application contains several (groups of) inventions as follows:

1. Claims: 1-6, 8-14

Polymer blends containing poly(ester)carbonate A, optionally graft polymer B, polyalkylene naphthalate C and optionally an additional component D selected from the group consisting of vinyl (co)polymer D1, polyalkylene terephthalate D2 or mixtures thereof, wherein the mixtures of polycarbonate, polyalkylene naphthalate and optionally polyalkylene terephthalate do not contain a tetrafluoroethylene polymer.

2. Claims: 1-4, 7, 9-14

Polymer blends containing graft polymer B and optionally poly(ester)carbonate A, polyalkylene naphthalate C and optionally an additional component D selected from the group consisting of vinyl (c)polymer D1, polyalkylene terephthalate D2 or mixtures thereof.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/09015

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3856884 A	24-12-1974	DE 2341159 A FR 2241575 A GB 1417805 A NL 7311635 A	20-03-1975 21-03-1975 17-12-1975 25-02-1975
JP 08325444 A	10-12-1996	NONE	
JP 04239529 A	27-08-1992	JP 3012010 B	21-02-2000
JP 50067355 A	06-06-1975	JP 1003290 C JP 54037632 B	27-06-1980 16-11-1979
JP 49129748 A	12-12-1974	JP 1107265 C JP 56049948 B	30-07-1982 26-11-1981

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08L69/00 C08L67/02 C08L51/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, PAJ

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 3 856 884 A (SAKAI K ET AL) 24. Dezember 1974 (1974-12-24) Seite 1, Spalte 1, Zeile 1 - Zeile 25; Ansprüche 1-8	1-4,8,9, 11-14
X	--- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 04, 30. April 1997 (1997-04-30) & JP 08 325444 A (MITSUBISHI CHEM CORP), 10. Dezember 1996 (1996-12-10) Zusammenfassung	1-5,8,9, 13
X	--- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 001 (C-1014), 5. Januar 1993 (1993-01-05) & JP 04 239529 A (TEIJIN LTD), 27. August 1992 (1992-08-27) Zusammenfassung	1-4,8,9, 13
	--- -/-	



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

8. Januar 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

01.06.2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

DECOCKER, L

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ^a	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; ANON.: "Poly(ethylene naphthalenedicarboxylate)/ polycarbonate blends" retrieved from STN Database accession no. 107:237778 XP002156621 Zusammenfassung & RES. DISCL. (1987), 283, 667-9,</p>	1-4, 6-10,13
X	<p>--- DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; NAKAMURA, YOSHITSUGU ET AL: "Polyester molding compositions with good color stability" retrieved from STN Database accession no. 84:60505 XP002156622 Zusammenfassung & JP 50 067355 A (TEIJIN, LTD., JAPAN) 6. Juni 1975 (1975-06-06)</p>	1-6,9-14
X	<p>--- DATABASE CHEMABS [Online] CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; UENO, MAKOTO ET AL: "Resin compositions to give molded articles with pearllike luster" retrieved from STN Database accession no. 82:141098 XP002156623 Zusammenfassung & JP 49 129748 A (TEIJIN CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 12. Dezember 1974 (1974-12-12) -----</p>	1-4,8,9, 13

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich

2. ☐ Ansprüche Nr.
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich

3. ☐ Ansprüche Nr.
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

siehe Zusatzblatt

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.

2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.

3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.

4. ☒ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:
1-6, 8-14

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☐ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
- ☐ Die Zahlung zusätzlicher Recherchegebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1-6,8-14

Polymer blends enthaltend Poly(ester)carbonat A, gegebenenfalls Pfropfpolymerisat B, Polyalkylennaphthalat C sowie gegebenenfalls eine weitere Komponente D ausgewählt aus der Gruppe aus Vinyl(co)polymerisat D1, Polyalkylenterephthalat D2 oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus Polycarbonat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylenterephthalat kein Tetrafluorethylenpolymerisat enthalten.

2. Ansprüche: 1-4,7,9-14

Polymerblends enthaltend Pfropfpolymerisat B und gegebenenfalls Poly(ester)carbonat A, Polyalkylennaphthalat C sowie gegebenenfalls eine weitere Komponente D ausgewählt aus der Gruppe aus Vinyl(co)polymerisat D1, Polyalkylenterephthalat D2 oder Mischungen hiervon.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/09015

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 3856884 A	24-12-1974	DE 2341159 A FR 2241575 A GB 1417805 A NL 7311635 A	20-03-1975 21-03-1975 17-12-1975 25-02-1975
JP 08325444 A	10-12-1996	KEINE	
JP 04239529 A	27-08-1992	JP 3012010 B	21-02-2000
JP 50067355 A	06-06-1975	JP 1003290 C JP 54037632 B	27-06-1980 16-11-1979
JP 49129748 A	12-12-1974	JP 1107265 C JP 56049948 B	30-07-1982 26-11-1981

Formblatt PCT/ISA/210 (Anhang Patentfamilie)(Juli 1992)

